



ФЕДЕРАЛЬНАЯ СЛУЖБА
ПО ИНТЕЛЛЕКТУАЛЬНОЙ СОБСТВЕННОСТИ,
ПАТЕНТАМ И ТОВАРНЫМ ЗНАКАМ

(12) ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ПАТЕНТУ

(21), (22) Заявка: 2006113438/28, 20.04.2006

(24) Дата начала отсчета срока действия патента:
20.04.2006

(45) Опубликовано: 20.07.2007 Бюл. № 20

(56) Список документов, цитированных в отчете о
поиске: SU 785824 A, 07.12.1980. SU 1210679
A3, 07.02.1986. RU 2194087 C2, 10.06.2002. US
4204119 A, 20.05.1980. US 4698505 A, 06.10.1987.

Адрес для переписки:

620002, г.Екатеринбург, ул.Мира, 19 ГОУ ВПО
"УГТУ-УПИ", Центр интеллектуальной
собственности, Т.В. Маркс

(72) Автор(ы):

Кружалов Александр Васильевич (RU),
Горбунов Сергей Владимирович (RU),
Иванов Владимир Юрьевич (RU),
Мильман Игорь Игоревич (RU),
Огородников Игорь Николаевич (RU),
Таусенев Дмитрий Сергеевич (RU),
Шульгин Борис Владимирович (RU)

(73) Патентообладатель(и):

ГОУ ВПО "Уральский государственный
технический университет-УПИ" (RU)

(54) СПОСОБ ТЕРМОХИМИЧЕСКОЙ ОБРАБОТКИ РАБОЧЕГО ВЕЩЕСТВА ДЛЯ ТЕРМОЛЮМИНЕСЦЕНТНОГО ДЕТЕКТОРА НА ОСНОВЕ КРИСТАЛЛОВ ОКСИДА БЕРИЛЛИЯ

(57) Реферат:

Предложенное изобретение относится к области термолюминесцентной дозиметрии фотонного излучения рентгеновского и гамма-диапазонов, а также электронного излучения, а именно к способам приготовления рабочих веществ термолюминесцентных детекторов. Задачей изобретения является разработка способа термохимической обработки рабочего вещества для термолюминесцентного детектора на основе кристаллов оксида бериллия, уменьшающего число пиков термостимулированной люминесценции (ТСЛ), упрощающего режим считывания, снижающего время считывания дозиметрической информации и повышающего чувствительность ТЛД детектора. Предложенный способ

термохимической обработки рабочего вещества для термолюминесцентного детектора на основе кристаллов оксида бериллия заключается в размещении кристаллов BeO в верхней части и металлического бериллия в нижней части двухсекционного молибденового контейнера и последующем нагреве его, обеспечивающем термообработку кристаллов в восстановительной атмосфере паров бериллия под давлением. При этом кристаллы BeO предварительно активируют ионами натрия, а термохимическую обработку ведут при температуре 1920-1970°C и давлении паров бериллия 2,6÷2,7 кПа в течение 2-3 часов с последующим охлаждением контейнера со скоростью 1,5-2°C/с. 2 ил.



FEDERAL SERVICE
FOR INTELLECTUAL PROPERTY,
PATENTS AND TRADEMARKS

(12) **ABSTRACT OF INVENTION**(21), (22) Application: **2006113438/28, 20.04.2006**(24) Effective date for property rights: **20.04.2006**(45) Date of publication: **20.07.2007 Bull. 20**

Mail address:

**620002, g.Ekaterinburg, ul.Mira, 19 GOU VPO
"UGTU-UPI", Tsentr intelektual'noj
sobstvennosti, T.V. Marks**

(72) Inventor(s):

**Kruzhlov Aleksandr Vasil'evich (RU),
Gorbunov Sergej Vladimirovich (RU),
Ivanov Vladimir Jur'evich (RU),
Mil'man Igor' Igorevich (RU),
Ogorodnikov Igor' Nikolaevich (RU),
Tausenev Dmitrij Sergeevich (RU),
Shul'gin Boris Vladimirovich (RU)**

(73) Proprietor(s):

**GOU VPO "Ural'skij gosudarstvennyj
tekhnicheskij universitet-UPI" (RU)**

(54) **METHOD FOR THERMO-CHEMICAL PROCESSING OF WORKING SUBSTANCE FOR THERMO-LUMINESCENT DETECTOR BASED ON BERYLLIUM OXIDE CRYSTALS**

(57) Abstract:

FIELD: thermo-luminescent dosimetry of photon radiation of x-ray and gamma spectrums, and also electronic radiation, namely, methods for preparing working substances of thermo-luminescent detectors.

SUBSTANCE: suggested method for thermo-chemical processing of working substance for thermo-luminescent detector based on beryllium oxide crystals includes placing BeO crystals in upper part and metallic beryllium in lower part of two-sectional molybdenum container and its following heating, ensuring thermal processing of crystals in restorative atmosphere of beryllium fumes under pressure. BeO crystals are activated

by sodium ions in advance, and thermo-chemical processing is performed at temperature of 1920-1970°C and pressure of beryllium fumes 2,6÷2,7 kPa during 2-3 hours with following cooling of container at 1,5-2°C/sec speed.

EFFECT: creation of method for thermo-chemical processing of working substance for thermo-luminescent detector on basis of beryllium oxide crystals, reducing number of spikes of thermo-stimulated luminescence, simplifying reading mode, reducing reading time of dosimetric information and increasing sensitivity of thermo-luminescent detector.

2 dwg

RU 2 303 276 C1

RU 2 303 276 C1

Изобретение относится к области термолюминесцентной дозиметрии (ТЛД) фотонного излучения рентгеновского и гамма-диапазонов, а также электронного излучения, а именно к способам приготовления рабочих веществ термолюминесцентных детекторов. Оно может быть использовано для создания систем радиационного и радиоэкологического

мониторинга селитебных зон, для решения задач индивидуальной и технологической дозиметрии, задач трансграничного радиационного мониторинга с целью предотвращения акций ядерного терроризма и с целью обеспечения программы нераспространения ядерного оружия.

Одним из перспективных рабочих веществ для твердотельной термолюминесцентной дозиметрии рентгеновского и гамма-излучения является оксид бериллия BeO , имеющий низкий эффективный атомный номер $Z_{\text{эфф}}^{\text{BeO}} = 7,13$ (всего на 4% отличающийся от эффективного атомного номера биологической ткани $Z_{\text{эфф}}^{\text{биол. ткань}} = 7,42$). Последнее обеспечивает метрологическую чистоту ТЛД детекторов на основе BeO при их использовании в персональной дозиметрии.

Известно рабочее вещество и способ термохимической обработки рабочего вещества для термолюминесцентного детектора ионизирующих излучений на основе оксида бериллия (заявки Японии №48-10105 и 48-10435, 1973, МПК G01T 1/11). В известном способе в состав рабочего вещества на основе оксида бериллия вводят примеси Li, Na, Mg, Al, Zn, P, W, Y и др., а само рабочее вещество на основе BeO нагревают и остекловывают, а затем используют в виде таблеток со стеклянной оболочкой по наружной поверхности таблеток. Однако известное рабочее вещество для ТЛД имеет множество пиков термостимулированной люминесценции (ТСЛ) в области 180÷185, 235÷240, 305÷310 и 320÷330°C, что затрудняет считывание и увеличивает время считывания дозиметрической информации, дестабилизирует фединг, снижает чувствительность рабочего вещества ТЛД на основе BeO и увеличивает время готовности считывателя к очередному циклу считывания дозиметрической информации.

Известен способ приготовления и использования рабочего вещества для термолюминесцентного детектора ионизирующих излучений в виде монокристаллов BeO : Li, Na (Cooke D.W., Jahan M.S., Alexander Ch., Shulgin B.V. Low Temperature Thermoluminescence studies of BeO single crystals // J. Appl. Phys., 1985, v.58, №6, p.2302-2307). Однако для известного рабочего вещества ТЛД на основе кристаллов BeO : Li, Na имеется множество пиков ТСЛ при температурах 40, 80-85, 170-180 и 205-225 K, а также при температурах выше комнатной. Это затрудняет считывание дозиметрической информации, дестабилизирует фединг и снижает чувствительность рабочего вещества ТЛД на основе BeO .

Известны рабочие вещества на основе кристаллов BeO и их термолюминесцентные свойства (A.V.Kruzhlov, B.V.Shulgin. Beryllium Oxide. Глава в книге "Luminescence and Related Properties of II-VI Semiconductors". Editors D.R.Vij and N.Singh. Nova Science Publishers, Inc. Commack, NY, 1998, p.341-362). Известные кривые ТСЛ для кристаллов BeO характеризуются наличием 9 пиков. Пики ТСЛ, обусловленные центрами захвата, расположены при температурах 100, 160, 300 (27°C), 450 (177°C), 510 (237°C), 580 (307°C), 600 (327°C), 620 (347°C) и 680 K (407°C). Наличие большого числа пиков ТСЛ затрудняет организацию считывания дозиметрической информации, требует нагрева до высокой температуры 450-500°C, дестабилизирует фединг, снижает чувствительность рабочего вещества ТЛД детектора и увеличивает время готовности считывателя к очередному циклу снятия дозиметрической информации.

Из всех известных способов термохимической обработки кристаллов на основе BeO наиболее близким к заявляемому является способ аддитивно-химического окрашивания (А.В.Кружалов, С.В.Горбунов, Б.В.Шульгин, В.А.Маслов. F-центр в облученных и аддитивно-окрашенных кристаллах BeO . Письма в ЖТФ, 1984, т.10, вып.24, с.1503-1507). В известном способе образцы кристаллов BeO для термохимической обработки помещали в верхнюю часть специально изготовленного двухсекционного молибденового контейнера

так, чтобы они не контактировали с расплавом бериллия ($T_{\text{плав}}=1285^{\circ}\text{C}$), помещенного изначально в контейнер в виде металлической стружки, находящимся в нижней части контейнера. Герметизацию контейнера осуществляли с помощью аргонодуговой сварки. Термохимическую обработку проводили в вакуумной печи при температуре 1900°C , так

5 что кристаллы BeO находились в парах бериллия при этом давлении $\sim 2,5$ кПа. После термохимической обработки образцы BeO быстро охлаждали для предотвращения создания агрегатных центров окраски. Известный способ термохимической обработки кристаллов BeO проводился с целью аддитивного окрашивания кристаллов BeO .

Задачей изобретения является разработка способа термохимической обработки

10 рабочего вещества для термолюминесцентного детектора на основе кристаллов оксида бериллия, уменьшающего число пиков ТСЛ, упрощающего режим считывания, снижающего время считывания дозиметрической информации и повышающего чувствительность ТЛД детектора.

Эта задача решается за счет того, что в качестве рабочих веществ для ТЛД детектора

15 на основе оксида бериллия используют активированные кристаллы BeO:Na , а их термохимическую обработку ведут в герметичном запаяном молибденовом контейнере в парах бериллия при температуре $1920\text{--}1970^{\circ}\text{C}$ при давлении паров бериллия $2,6\div 2,7$ кПа, в течение 2-3 часов с последующим быстрым охлаждением.

Сущность изобретения заключается в следующем. Используют активированные

20 кристаллы BeO:Na , которые помещают в верхнюю часть двухсекционного молибденового контейнера так, чтобы они не соприкасались ни с бериллиевой стружкой, находящейся в нижней части контейнера, ни с ее расплавом, когда температура контейнера превысит $1285\text{--}1290^{\circ}\text{C}$. Контейнер герметизируют с помощью аргонодуговой сварки и помещают в печь.

Термохимическую обработку ведут в вакуумной печи при температуре $1920\text{--}1970^{\circ}\text{C}$ при давлении паров бериллия, окутывающих и диффундирующих в кристаллы BeO:Na , на уровне $2,6\text{--}2,7$ кПа в течение 2-3 часов. После такой термохимической обработки кристаллов BeO:Na печь выключают и контейнер с кристаллами принудительно охлаждают

25 обдуванием воздушной струей со скоростью $1,5\text{--}2^{\circ}\text{C/с}$.

Термохимическая обработка рабочего вещества для термолюминесцентного детектора на основе кристаллов оксида бериллия в парах бериллия при $1920\text{--}1970^{\circ}\text{C}$ в течение 2-3 часов приводит к тому, что число центров захвата, ответственных за пики ТСЛ, образующихся в кристаллах BeO при такой термообработке, резко сокращается. Вместо

30 нескольких пиков ТСЛ при температуре выше комнатной наблюдается один основной пик с максимумом при 250°C и слабый пик ТСЛ при 203°C . Это облегчает считывание и скорость обработки дозиметрической информации, поскольку не требуется нагрев кристалла в широком диапазоне температур: теперь считыватель настроен на один пик, это обеспечивает стабилизацию фединга из-за отсутствия перезахвата носителей заряда на

35 различных уровнях захвата (из-за уменьшения вероятности эффекта Пула-Френкеля), снижает потери дозиметрической информации и соответственно увеличивает чувствительность детектора.

Способ иллюстрируется следующими примерами выполнения.

Пример 1. Кристаллы активированного оксида бериллия BeO:Na помещают внутрь

45 двухсекционного молибденового контейнера. Их располагают в верхней части контейнера. В нижней части контейнера располагают бериллиевую стружку, в парах которой после расплава бериллиевой стружки купаются кристаллы BeO:Na . Для обеспечения необходимой термохимической обработки кристаллов BeO:Na контейнер герметизируют с помощью аргонодуговой сварки и помещают в вакуумную печь. Режим термохимической

50 обработки включает в себя выдержку контейнера с кристаллами BeO:Na при температуре 1920°C в течение 2 часов. Расчетное давление паров бериллия при этом составляет $2,6$ кПа. Затем кристаллы BeO:Na быстро принудительно охлаждают на воздухе. После остывания кристаллы BeO:Na , прошедшие вышеописанную термохимическую обработку,

готовы к использованию в качестве рабочих веществ для термолюминесцентной дозиметрии.

Облучение рабочих веществ ТЛД на основе кристаллов BeO:Na проводилось излучением $\text{Sr}^{90}/\text{Y}^{90}$ -источником с мощностью дозы в месте расположения детектора 10 мГр/мин. Каждый кристалл облучался на протяжении 10 минут. После облучения снималась кривая ТСЛ при нагреве образца до температуры 460°C. Параллельно такой же процедуре подвергался образец BeO:Na, не прошедший термохимической обработки.

Кривые термовысвечивания (КТВ) измерялись по стандартной методике на экспериментальной установке, с компьютерным регулированием нагрева образцов. В качестве фотоприемника применялся фотоэлектронный умножитель ФЭУ-142, спектральная чувствительность которого соответствует спектрам термолюминесценции исследуемых образцов.

На фиг.1 представлена кривая термовысвечивания образца BeO:Na, не прошедшего термохимической обработки, при времени облучения 10 минут. Как видно, кривая термовысвечивания необработанного образца BeO:Na имеет сложный состав. Трудно выделить основной оптимальный дозиметрический пик. Для снятия дозиметрической информации требуется нагрев до 450-500°C и обработка пиков ТСЛ при 264, 331 и 411°C, что увеличивает фединг и снижает чувствительность ТЛД, а также удлиняет процесс считывания и время восстановления считывателя до готовности обработки следующего образца рабочего вещества ТЛД. При увеличении времени облучения интенсивность пиков возрастает линейно.

На фиг.2 представлена кривая ТСЛ образца BeO:Na, прошедшего термохимическую обработку, при времени облучения 10 минут. Как видно, термохимическая обработка образцов существенно изменяет ситуацию. Кривая термовысвечивания кристалла BeO:Na после термохимической обработки в парах бериллия характеризуется более простым видом (фиг.2). Основная светосумма сосредоточена в пределах хорошо выраженного узкого пика ТСЛ при 250°C полушириной всего 57°C. Интенсивность этого пика линейно возрастает с увеличением дозы в пределах 10-200 мГр/мин.

Пример 2. Кристаллы оксида бериллия BeO:Na подвергают термохимической обработке с использованием тех же самых предварительных технологических процедур, описанных в примере 1. Однако температуру печи поддерживают на уровне 1970°C и ведут термохимическую обработку в течение 3 часов. Расчетное давление паров бериллия при этом достигает 2,7 кПа. Кривая ТСЛ для рабочего вещества ТЛД на основе кристаллов BeO:Na, прошедшего термохимическую обработку, имеет такой же вид, что и кривая ТСЛ на фиг.2. Как видно для образцов, прошедших вышеописанную термохимическую обработку, характерен один основной пик ТСЛ при 250°C. В этом случае не требуется разогрев рабочего вещества до 450-500°C, его достаточно разогреть до 300°C, чтобы снять всю дозиметрическую информацию. Температура основного пика ТСЛ при 250°C обеспечивает стабильность фединга, увеличение скорости обработки дозиметрической информации с помощью считывателя и уменьшает время готовности считывателя к работе после очередного сеанса снятия дозиметрической информации.

Примеры, связанные с более высокой температурой и большим временем термохимической обработки рабочих веществ на основе кристаллов BeO:Na, показывают их неоптимальность, лишнюю затратность и дополнительную опасность, связанную с режимами повышенного давления. Примеры, связанные с более низкой температурой и меньшим временем термохимической обработки рабочих веществ на основе кристаллов BeO:Na, также показывают их недостаточную эффективность: снижения числа пиков ТСЛ не наблюдается.

Формула изобретения

Способ термохимической обработки рабочего вещества для термолюминесцентного детектора на основе кристаллов оксида бериллия, включающий размещение кристаллов BeO в верхней части и металлического бериллия в нижней части двухсекционного

молибденового контейнера и последующий нагрев его, обеспечивающий термообработку кристаллов в восстановительной атмосфере паров бериллия под давлением, отличающийся тем, что кристаллы ВеО предварительно активируют ионами натрия, а термохимическую обработку ведут при температуре 1920-1970°C и давлении паров бериллия 2,6÷2,7 кПа в течение 2-3 ч с последующим охлаждением контейнера со скоростью 1,5-2°C/с.

10

15

20

25

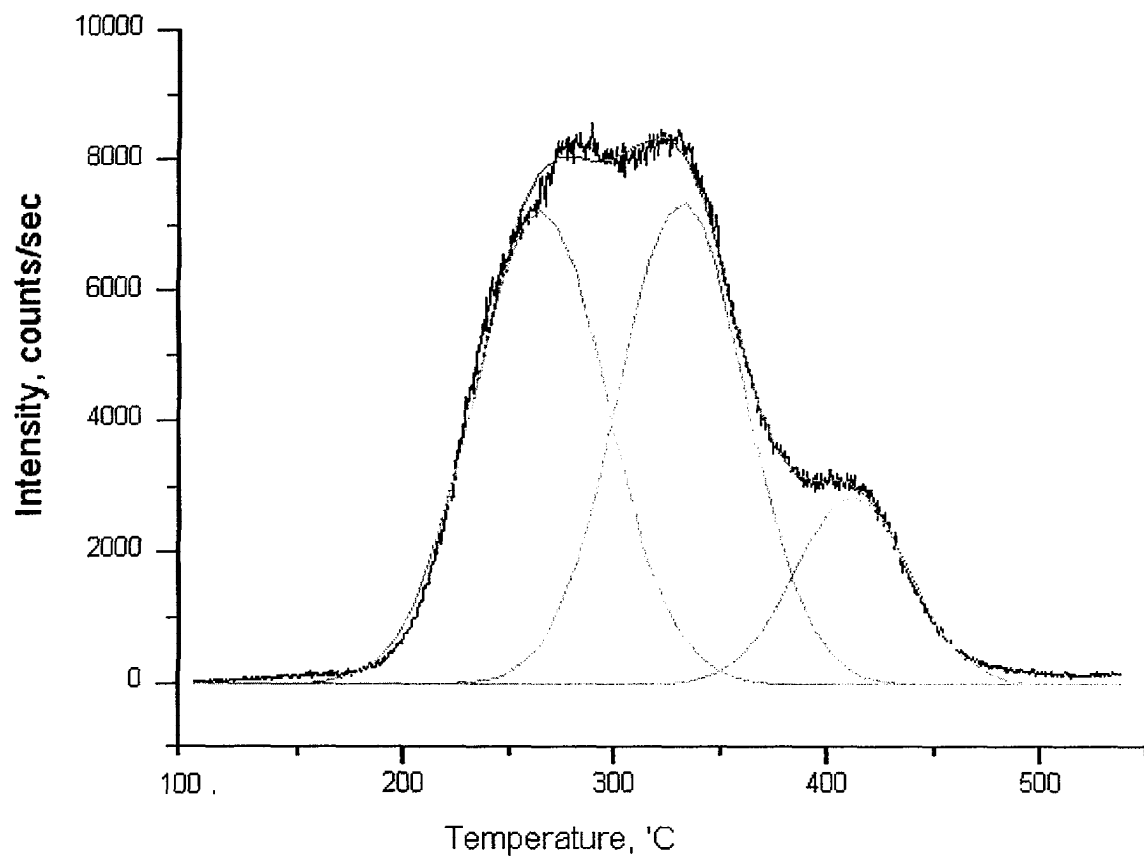
30

35

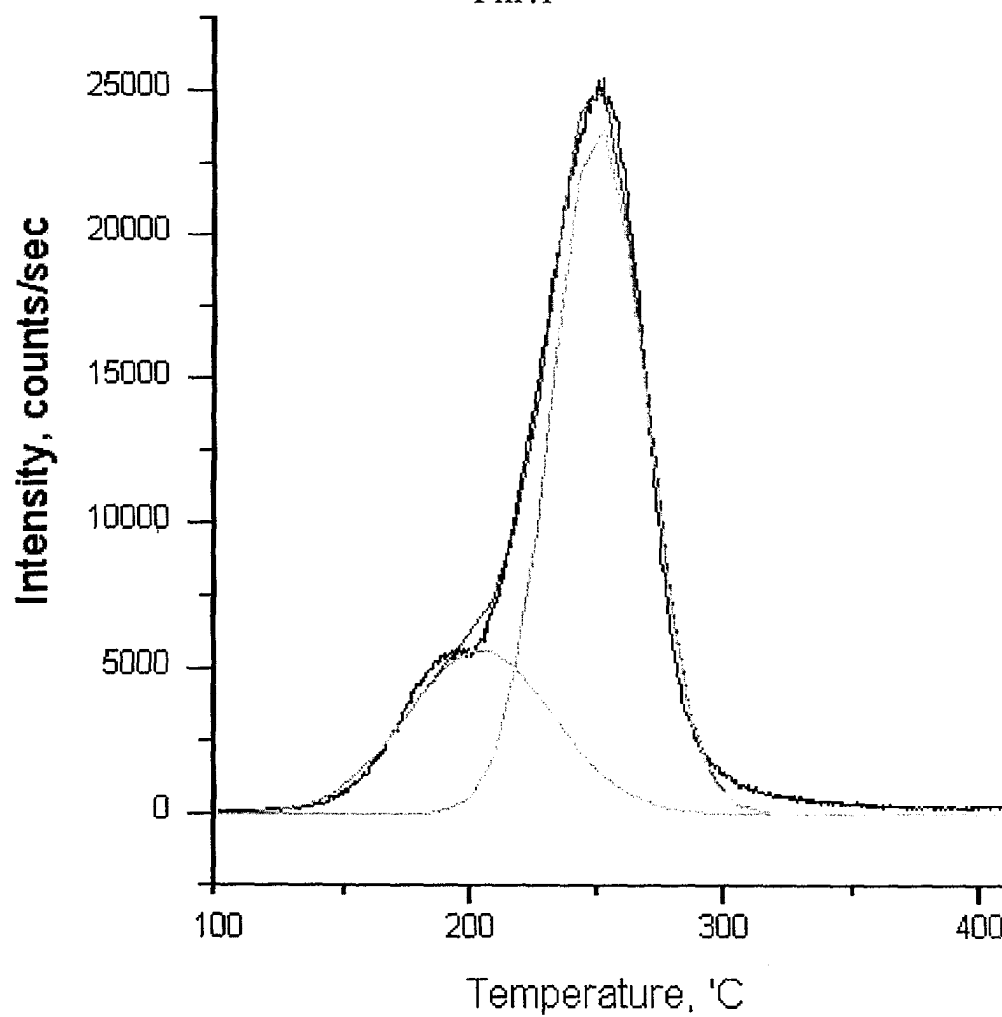
40

45

50



Фиг.1



Фиг.2



ФЕДЕРАЛЬНАЯ СЛУЖБА
ПО ИНТЕЛЛЕКТУАЛЬНОЙ СОБСТВЕННОСТИ,
ПАТЕНТАМ И ТОВАРНЫМ ЗНАКАМ

(12) ИЗВЕЩЕНИЯ К ПАТЕНТУ НА ИЗОБРЕТЕНИЕ

ММ4А - Досрочное прекращение действия патента СССР или патента Российской Федерации на изобретение из-за неуплаты в установленный срок пошлины за поддержание патента в силе

(21) Регистрационный номер заявки: **2006113438**

Дата прекращения действия патента: **21.04.2008**

Извещение опубликовано: **20.03.2010** БИ: **08/2010**
